

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2005 年 9 月 9 日 (09.09.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/083136 A1

(51) 国際特許分類: C22C 5/04, C23C 14/34, C25C 5/02

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/001488

(22) 国際出願日: 2005 年 2 月 2 日 (02.02.2005)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2004-056022 2004 年 3 月 1 日 (01.03.2004) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社  
日鉱マテリアルズ (NIKKO MATERIALS CO., LTD.)  
[JP/JP]; 〒1050001 東京都港区虎ノ門二丁目 1 〇 番  
1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 新藤 裕一朗  
(SHINDO, Yuichiro) [JP/JP]; 〒3191535 茨城県北茨  
城市華川町白場 1 8 7 番地 4 株式会社日鉱マテ  
リアルズ磯原工場内 Ibaraki (JP). 久野 晃 (HISANO,  
Akira) [JP/JP]; 〒3191535 茨城県北茨城市華川町白場  
1 8 7 番地 4 株式会社日鉱マテリアルズ磯原工場  
内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 小越 勇 (OGOSHI, Isamu); 〒1050002 東京都  
港区愛宕一丁目 2 番 2 号 虎ノ門 9 森ビル 3 階 小越  
国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が  
可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,  
BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,  
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,  
ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,  
LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA,  
NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,  
SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,  
US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護  
が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA,  
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,  
BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE,  
BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU,  
IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),  
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,  
MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HIGH-PURITY Ru POWDER, SPUTTERING TARGET OBTAINED BY SINTERING THE SAME, THIN FILM OBTAINED BY SPUTTERING THE TARGET AND PROCESS FOR PRODUCING HIGH-PURITY Ru POWDER

(54) 発明の名称: 高純度 Ru 粉末、該高純度 Ru 粉末を焼結して得るスパッタリングターゲット及び該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜並びに高純度 Ru 粉末の製造方法

(57) Abstract: A high-purity Ru powder characterized in that the content of each of alkali metal elements, such as Na and K, is  $\leq 10$  wtppm while the content of Al is in the range of 1 to 50 wtppm. Further, there is provided a process for producing the high-purity Ru powder characterized in that electrolysis is carried out in a solution with the use of Ru raw material of  $\leq 3N$  (99.9%) purity as an anode so as to effect purification thereof. Still further, there is provided a high-purity Ru powder for sputtering target production having its hazardous substance content minimized, which is less in the occurrence of particles at film formation, uniformizing film thickness distribution, and which has a purity of  $\geq 4N$  (99.99%), being suitable to formation of an electrode material for capacitor of semiconductor memory. Moreover, there are provided a sputtering target obtained by sintering the high-purity Ru powder; a thin film obtained by sputtering the target; and a process for producing the high-purity Ru powder.

(57) 要約: Na、K などのアルカリ金属元素の各含有量が 10 wtppm 以下、Al の含有量が 1 ~ 50 wtppm であることを特徴とする高純度 Ru 粉末、及び純度 3N (99.9%) 以下の Ru 原料をアノードとし、溶液中で電解して精製したことを特徴とする同高純度 Ru 粉末の製造方法。有害物質を極力低減させるとともに、成膜時のパーティクルの発生数が少なく、膜厚分布が均一であり、かつ 4N (99.99%) 以上の純度を持ち、半導体メモリーのキャパシタ用電極材を形成する際に好適なスパッタリングターゲット製造用高純度 Ru 粉末、該高純度 Ru 粉末を焼結して得たスパッタリングターゲット及び該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜並びに前記高純度 Ru 粉末の製造方法を提供する。

WO 2005/083136 A1

## 明 細 書

高純度Ru粉末、該高純度Ru粉末を焼結して得るスパッタリングターゲット及び該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜並びに高純度Ru粉末の製造方法

### 技術分野

[0001] この発明は、4N(99.99%)以上の純度を持ち、半導体メモリーのキャパシタ用電極材を形成する際に好適なスパッタリングターゲット製造用高純度Ru粉末、該高純度Ru粉末を焼結して得たスパッタリングターゲット及び該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜並びに前記高純度Ru粉末の製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 今日、Ruは半導体キャパシタの電極材料等に用途が急速に拡大している。このような電極は、Ruターゲットをスパッタリングして形成するのが一般的である。

信頼性のある半導体としての動作性能を保証するためには、スパッタリング後に形成される上記のような材料中に半導体デバイスに対して有害である不純物を極力低減させることが重要である。

すなわち、

Na、K等のアルカリ金属元素

U、Th等の放射性元素

Fe、Ni、Co、Cr、Cuの遷移金属等の元素

を極力減少させ、4Nすなわち99.99%(重量)以上の純度をもつことが望ましい。

[0003] 上記不純物が有害である理由としては、Na、K等のアルカリ金属は、ゲート絶縁膜中を容易に移動しMOS-LSI界面特性の劣化の原因となり、U、Th等の放射性元素は該元素より放出する $\alpha$ 線によって素子のソフトエラーの原因となり、さらに不純物として含有されるFe、Ni、Co、Cr、Cuの遷移金属等の元素は界面接合部のトラブルの原因となるからである。

このような中で、特にNa、K等のアルカリ金属の有害性が指摘されている。逆にFe、Ni、Co、Cr、Cuの遷移金属等の元素はそれほど、有害視されているわけではなく、

ある程度の存在は許容されている。

- [0004] 従来のRuターゲットの組成を見ると、アルカリ金属元素各1ppm未満、アルカリ土類金属元素各1ppm未満、遷移金属元素各1ppm未満、放射性元素各10ppb未満、炭素及びガス成分元素(酸素、水素、窒素、塩素)合計で500ppm未満、ガス成分を除いたルテニウムの純度が99.995%以上、さらにAl、Siが各1ppm未満であるルテニウム(例えば、特許文献1参照)、炭素、酸素、塩素の各元素の含有量が100ppm以下であり、ガス成分を除いたルテニウムの純度が99.995%以上であるルテニウム(例えば、特許文献2参照)、鉄系元素5ppm以下、アルカリ金属元素1ppm、放射性元素0.01ppm以下、タングステン1ppm以下であるルテニウム(例えば、特許文献3参照)、99.999重量%以上の高純度ルテニウムスパッタリングターゲット(例えば、特許文献4参照)、アルカリ金属元素各0.1重量ppm以下、アルカリ土類金属元素各0.1重量ppm以下、白金族元素以外の遷移金属元素各0.1重量ppm以下、放射性同位体元素各1重量ppb以下、ガス成分元素の合計30重量ppm以下であり、99.995重量%である高純度ルテニウムスパッタリングターゲット(例えば、特許文献5参照)、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アルミニウム、鉄、ニッケル、銅が各0.1ppm以下である高純度ルテニウム粉末(例えば、特許文献6参照)、Na、K、Ca、Mgが合計5ppm以下、Fe、Ni、Coの1種以上0.5〜50ppm、放射性同位元素5ppb以下、Fe、Ni、Coを除き99.999重量%以上であるルテニウムスパッタリングターゲット(例えば、特許文献7参照)、99.999%以上の高純度ルテニウムスパッタリングターゲット(例えば、特許文献8参照)が開示されている。

特許文献1:特開平11-50163号公報

特許文献2:特開2000-34563号公報

特許文献3:特開平11-217633号公報

特許文献4:特開平9-41131号公報

特許文献5:特開2002-105631号公報

特許文献6:特開平9-227966号公報

特許文献7:特開平8-199350号公報

特許文献8:特開平8-302462号公報

[0005] 上記特許文献をみると、半導体としての動作性能を保証するために、ルテニウム中に含有する有害と考えられている不純物を極力低減させ、高純度化したルテニウム技術が開示されていると言える。

しかし、半導体メモリーのキャパシタ用電極材を形成するのに使用されるスパッタリングターゲット材としては、成膜時にパーティクルの発生が少なく、膜厚分布が均一であるという特性が要求されるが、現状ではそれが十分でないという問題があった。

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、有害物質を極力低減させるとともに、パーティクルの発生が少なく、成膜時の膜厚分布が均一であり、さらに4N(99.99%)以上の純度を持ち、半導体メモリーのキャパシタ用電極材形成に好適なスパッタリングターゲット製造用高純度Ru粉末、該高純度Ru粉末を焼結して得たスパッタリングターゲット及び該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜並びに前記高純度Ru粉末の製造方法を提供するものである。

### 課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、1)Na、Kなどのアルカリ金属元素の各含有量が10wtppm以下、Alの含有量が1〜50wtppmであることを特徴とする高純度Ru粉末、2)Alの含有量が5〜20wtppmであることを特徴とする高純度Ru粉末、3)Fe、Ni、Co、Cr、Cu等の遷移金属元素の含有量が総計で100wtppm以下であり、U、Th等の放射性元素の各含有量が10wtppb以下であることを特徴とする1又は2記載の高純度Ru粉末、4)酸素、窒素、水素等のガス成分を除き、純度が99.99%以上であることを特徴とする1〜3のいずれかに記載の高純度Ru粉末、5)酸素が100wtppm以下であることを特徴とする4記載の高純度Ru粉末、6)上記1〜5のいずれかに記載の高純度Ru粉末を焼結して得ることを特徴とするスパッタリングターゲット及び該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜、7)純度3N(99.9%)以下のRu原料をアノードとし、溶液中で電解して精製したことを特徴とする1〜5のいずれかに記載の高純度Ru粉末の製造方法を提供するものである。

## 発明の効果

- [0008] 本発明は、ターゲット製造の原料となる高純度Ru粉末中の、Na、Kなどのアルカリ金属元素の各含有量が10wtppm以下とし、さらにAlを1〜50wtppm含有させることにより、成膜時のパーティクルの発生数が少なく、膜厚分布が均一であるターゲットを製造することができた。これにより、誘電体薄膜メモリー用電極材として極めて優れた特性の薄膜を得ることが可能となった。

## 発明を実施するための最良の形態

- [0009] 本発明の高純度Ru粉末は、Na、Kなどのアルカリ金属元素の各含有量が10wtppm以下、Alの含有量が1〜50wtppmである。Al及び酸素、窒素、水素等のガス成分を除き、純度が99.99%以上であること、さらには純度を99.999%以上とするのが望ましい。

Na、Kなどのアルカリ金属元素の各含有量が10wtppm以下とする理由は、アルカリ金属がゲート絶縁膜中を移動し易く、MOS-LSI界面特性を劣化させるからである。その有害性が強く指摘されている。

このような界面特性の劣化を抑制するために、アルカリ金属元素の各含有量を10wtppm以下に必要がある。

- [0010] 本発明において、特徴的なのはAlを1〜50wtppmの範囲で添加することである。これは、ターゲットの組織を微細化し、結晶方位をランダムにする作用があり、これによって成膜時のパーティクルの発生数を減少させ、膜厚分布をより均一にする効果を得ることができた。

従来では、Alは好ましくない元素として、極力低減させ1ppm未満していた。しかし、Alは、半導体特性におおきな影響を与えないばかりか、上記のように優れた効果を有する。これは不純物としての影響よりも、むしろ好ましい添加元素としての役割を有するものである。望ましくは、Alの含有量を5〜20wtppmとする。

Al含有量が50wtppmを超えると、パーティクルが逆に多くなる傾向になった。これは、Alが $\text{Al}_2\text{O}_3$ 等の異物として存在するようになるためと考えられる。したがって、Al含有量の上限值は50wtppmとする必要がある。

- [0011] さらに、Fe、Ni、Co、Cr、Cu等の遷移金属元素の含有量を総計で100wtppm以

下、及びU、Th等の放射性元素の各含有量を10wtppb以下とする。これらFe、Ni、Co、Cr、Cuの遷移金属等の元素は、界面接合部のトラブルの原因となる不純物であるからである。また、U、Th等の放射性元素は、放射される $\alpha$ 線によって素子のソフトエラーとなるので、各含有量を10wtppb以下とすることが望ましい。

遷移金属元素は、半導体機器への不純物としては、そう大きな影響を与えるものではないが、総計で100wtppm以下とすることが望ましい。

また、酸素、窒素、水素等のガス成分の総量は、1000wtppm以下とするのが望ましい。これは、パーティクル発生数に影響を与えるからである。

- [0012] 高純度Ru粉末は、純度3N(99.9%)以下のRu原料をアノードとし、酸性あるいはアンモニア溶液中で電解して精製することにより製造する。酸としては、硝酸、塩酸の溶液が望ましい。これによって、比較的低コストで、安定した品質の高純度Ru粉末を得ることができる。

スパッタリングターゲットは、このようにして製造した高純度Ru粉末を焼結することにより得ることができる。

このようにして製造したターゲットを基板上にスパッタリングすることにより均一性に優れ、誘電体薄膜メモリー用電極材等として極めて優れた特性の薄膜を得ることができる。

## 実施例

- [0013] 次に、実施例に基づいて本発明を説明する。実施例は発明を容易に理解するためのものであり、これによって本発明を制限されるものではない。すなわち、本発明は本発明の技術思想に基づく他の実施例及び変形を包含するものである。

- [0014] (実施例1)

表1に示す純度3NレベルのRu粉約2kgを、隔膜を利用したアノードボックスに入れた。カソードにはグラファイトを用いた。電解液は、pH2の硝酸酸性とし、電流5Aで20hr電解精製した。その後、アノードボックスよりRu粉を取り出し、洗浄乾燥した。

得られたRu粉の純度を、同様に表1に示す。Na、K含有量は、それぞれ2wtppm、0.5wtppmであり、Al含有量は10wtppmであった。

このRu粉を、ホットプレスを使用して1400°Cで焼結し、ターゲットとした。さらに、こ

のターゲットを用いてスパッタリングを行なった。

この結果を、同様に表1に示す。表1に示すように、成膜時のパーティクルの発生数が少なく、得られた薄膜は均一な膜厚分布を有しているという優れた結果が得られた。

[0015] (実施例2)

表1に示す純度3NレベルのRu粉約2kgを、隔膜を利用したアノードボックスに入れた。カソードにはグラファイトを用いた。電解液は、pH2の塩酸酸性とし、電流5Aで20hr電解精製した。その後、アノードボックスよりRu粉を取り出し、洗浄乾燥した。

得られたRu粉の純度を、同様に表1に示す。Na、K含有量は、それぞれ4wtppm、1wtppmであり、Al含有量は15wtppmであった。

このRu粉を、ホットプレスを使用して1400° Cで焼結し、ターゲットとした。さらに、このターゲットを用いてスパッタリングを行なった。

この結果を、同様に表1に示す。表1に示すように、実施例1と同様に、成膜時のパーティクルの発生数が少なく、得られた薄膜は均一な膜厚分布を有しているという優れた結果が得られた。

[0016] (実施例3)

表1に示す純度3NレベルのRu粉約2kgを、隔膜を利用したアノードボックスに入れた。カソードにはグラファイトを用いた。電解液は、pH9のアンモニア溶液とし、電流5Aで20hr電解精製した。その後、アノードボックスよりRu粉を取り出し、洗浄乾燥した。

得られたRu粉の純度を、同様に表1に示す。Na、K含有量は、それぞれ0.5wtppm、0.1wtppmであり、Al含有量は7wtppmであった。このRu粉を、ホットプレスを使用して1400° Cで焼結し、ターゲットとした。さらに、このターゲットを用いてスパッタリングを行なった。

この結果を、同様に表1に示す。表1に示すように、実施例1と同様に、パーティクルの発生数が少なく、得られた薄膜は均一な膜厚分布を有しているという優れた結果が得られた。

[0017] (実施例4)

表1に示す純度3NレベルのRu粉約2kgを、隔膜を利用したアノードボックスに入れた。カソードにはグラファイトを用いた。電解液は、pH2の塩酸酸性とし、1mg/Lの $\text{AlCl}_3$ を添加して、電流5Aで20hr電解精製した。その後、アノードボックスよりRu粉を取り出し、洗浄乾燥した。

得られたRu粉の純度を、同様に表1に示す。Na、K含有量は、それぞれ6wtppm、3wtppmであり、Al含有量は43wtppmであった。このRu粉を、ホットプレスを使用して1400°Cで焼結し、ターゲットとした。さらに、このターゲットを用いてスパッタリングを行なった。

この結果を、同様に表1に示す。表1に示すように、パーティクルの発生数が若干多くなり、得られた薄膜の膜厚分布も若干悪くなったが、許容できる範囲であった。

[0018] (比較例1)

純度3NレベルのRu粉をそのままホットプレスし、ターゲットとした。Na、Kは原料と同じ純度の、それぞれ80wtppm、40wtppmであり、Al含有量は110wtppmであった。このターゲットを用いてスパッタリングを行なった結果、表1に示すように、パーティクルの発生数が多く、得られた薄膜の膜厚分布もやや悪いという結果になった。

[0019] (比較例2)

純度3NレベルのRu粉をEB溶解して、純度5NレベルのRuインゴットを得た。Ruは圧延加工ができないので、そのまま切り出してターゲットを製造した。

得られたRu粉の純度を、同様に表1に示す。Na、K含有量は、それぞれ<0.1wtppm、<0.1wtppmであり、Al含有量は<0.1wtppmであった。このターゲットを用いてスパッタリングした。

ターゲットの結晶粒径が粗大化し、パーティクルの発生が著しく多く、また膜厚分布も非常に悪いという結果になった。以上から、Ruターゲットは、焼結体であることが良いということが分かった。

[0020] (比較例3)

実施例1と同様な粉末の製造方法によるが、電解精製時間を5hrと短くした。これによって得られたRu粉を用いてターゲットとした。ターゲットの純度は4Nであるが、Na、K、Alが本発明の基準値よりも高い、すなわちNa、K含有量が、それぞれ40wtpp



m、15wtppmであり、Al含有量は70wtppmであった。

次に、これによって得たターゲットを用いてスパッタリングした。この結果、表1に示すように、パーティクルの発生数が多くなり、得られた薄膜の膜厚分布もやや悪いという結果になった。

[0021] (比較例4)

実施例1と同様な粉末の製造方法によるが、電解精製時間を100hrと長くした。これによって得られたRu粉を用いてターゲットとした。純度4Nであるが、Alが本発明の基準値よりも低い1ppm未満のRu粉を用いてターゲットとした。他の不純物量は表1に示す通りである。

次に、これによって得たターゲットを用いてスパッタリングした。その結果、粒径がやや大きくなり、膜厚分布が悪くなって、パーティクル数も増加した。

[0022] [表1]

(ppm)

	原料	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
Na	80	2	4	0.5	6	80	<0.1	40	0.3
K	40	0.5	1	0.1	3	40	<0.1	15	0.1
Fe	38	28	25	30	29	38	<0.1	35	23
Si	38	20	21	18	27	38	<0.1	32	26
Ir	2.3	2.3	2.5	2.5	2.4	2.3	2.3	2.3	2.3
Ti	1.2	1.2	1.3	1.2	1.2	1.2	<0.1	1.2	1.2
Al	110	10	15	7	43	110	<0.1	70	0.8
Ni	2.6	2.1	2.2	2.5	2.3	2.6	<0.1	2.5	2.0
O	200	70	80	50	90	200	<10	150	40
ターゲット平均 粒径( $\mu\text{m}$ )		3.6	4.0	4.0	2.5	2.0	400	2.3	15
パーティクル量 (個/ウエーハー)		5	7	3	10	50	150	40	25
膜厚分布(%)		$\pm 3$	$\pm 3$	$\pm 3$	$\pm 4$	$\pm 4$	$\pm 15$	$\pm 4$	$\pm 6$

### 産業上の利用可能性

[0023] ターゲット製造の原料となる高純度Ru粉末中の、Na、Kなどのアルカリ金属元素の各含有量が10wtppm以下、U、Th等の放射性元素の各含有量が10wtppb以下とし、さらにAlを1〜50wtppm含有させることにより、ターゲットの結晶粒径を小さくし、

成膜時のパーティクルの発生数が少なく、膜厚分布が均一であるターゲットを製造することができる。これにより、極めて優れた特性の薄膜を得ることが可能であり、誘電体薄膜メモリー用電極材として有用である。

## 請求の範囲

- [1] Na、Kなどのアルカリ金属元素の各含有量が10wtppm以下、Alの含有量が1～50wtppmであることを特徴とする高純度Ru粉末。
- [2] Alの含有量が5～20wtppmであることを特徴とする高純度Ru粉末。
- [3] Fe、Ni、Co、Cr、Cu等の遷移金属元素の含有量が総計で100wtppm以下であり、かつU、Th等の放射性元素の各含有量が10wtppb以下であることを特徴とする請求項1又は2記載の高純度Ru粉末。
- [4] 酸素、窒素、水素等のガス成分を除き、純度が99.99%以上であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の高純度Ru粉末。
- [5] 酸素が100wtppm以下であることを特徴とする請求項4記載の高純度Ru粉末。
- [6] 請求項1～5のいずれかに記載の高純度Ru粉末を焼結して得ることを特徴とするスパッタリングターゲットまたは該ターゲットをスパッタリングして得た薄膜。
- [7] 純度3N(99.9%)以下のRu原料をアノードとし、溶液中で電解して精製したことを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の高純度Ru粉末の製造方法。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/001488

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C22C5/04, C23C14/34, C25C5/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C22C5/04, C23C14/34, C25C5/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2001-20065 A (Hitachi Metals, Ltd.), 23 January, 2001 (23.01.01), Claims; Par. Nos. [0001], [0019], [0023], [0030], [0031], [0038], [0040], [0044], [0045] & US 6589311 B1 & US 6676728 B2 & EP 1066899 A2	1, 3-6 7
X Y A	JP 2000-178721 A (Mitsubishi Materials Corp.), 27 June, 2000 (27.06.00), Par. Nos. [0002] to [0005] (Family: none)	1, 4, 6 3 7
Y	JP 2002-167668 A (Toshiba Corp.), 11 June, 2002 (11.06.02), Par. Nos. [0006] to [0008] (Family: none)	3



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
09 May, 2005 (09.05.05)

Date of mailing of the international search report  
24 May, 2005 (24.05.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/001488

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-105631 A (Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.), 10 April, 2002 (10.04.02), Claims (Family: none)	3

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/001488

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

(See extra sheet.)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1 and 3-7.

**Remark on Protest**

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/001488

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

In order for a group of inventions claimed in claims to satisfy the requirement of unity of invention, there must be "special technical features" for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept.

In this connection, whether the technical matter common to claims 1 and 2 "Al-containing high-purity Ru powder" can be "special technical features" will be studied. A high-purity Ru raw material powder wherein the content of each of aluminum, etc. is  $\leq 1$  ppm is described in the prior art reference JP 2000-178721 A (Mitsubishi Materials Corp.) 27 June, 2000 (27.06.00), Par. No. [0005]. Thus, the above common matter is not a novel feature and consequently cannot be "special technical features". Further, as a high-purity Ru raw material powder wherein the content of each of alkali metals and aluminum is  $\leq 1$  ppm is described in the JP 2000-178721 A, it can be stated that the invention of claim 1 per se lacks novelty.

Consequently, there exist no "special technical features" for linking the group of inventions claimed in claims 1-7 so as to form a single general inventive concept. Therefore, it is apparent that the requirement of unity of invention is not satisfied.

Now, the number of groups of inventions linked with each other so as to form a general inventive concept, claimed in the claims of this international application will be studied.

It appears that there are described at least two inventions grouped into:

- Claim 1 and parts of claims 3 to 7 quoting claim 1, and
- Claim 2 and parts of claims 3 to 7 quoting claim 2.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> C22C5/04, C23C14/34, C25C5/02

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> C22C5/04, C23C14/34, C25C5/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP 2001-20065 A(日立金属株式会社), 2001. 01. 23, 【特許請求の範囲】, 【0001】, 【0019】, 【0023】, 【0030】, 【0031】, 【0038】, 【0040】, 【0044】, 【0045】 &US 6589311 B1&US 6676728 B2&EP 1066899 A2	1, 3-6 7
X Y A Y	JP 2000-178721 A(三菱マテリアル株式会社), 2000. 06. 27, 【0002】 ~ 【0005】 (ファミリーなし)	1, 4, 6 3 7 3
	JP 2002-167668 A(株式会社東芝), 2002. 06. 11, 【0006】 ~ 【0008】 (ファミリーなし)	3

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09. 05. 2005

国際調査報告の発送日

24. 5. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

青木 千歌子

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

4X

9351

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2002-105631 A(住友金属鉱山株式会社), 2002. 04. 10, 【特許請求の範囲】(ファミリーなし)	3

## 第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。  
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

（特別ページに続く）

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求の範囲 1, 3-7

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。  
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

請求の範囲に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たすためには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」の存在が必要である。

そこで、請求の範囲1と2に共通する技術事項である「A1を含有する高純度Ru粉末」が、「特別な技術的特徴」となり得るか検討すると、先行技術文献であるJP 2000-178721 A（三菱マテリアル株式会社）2000.06.27の【0005】にアルミニウム等の含有量が各々1 ppm以下である高純度Ru原料粉末が記載されており、新規な特徴ではないから「特別な技術的特徴」とはなり得ない。また、JP 2000-178721 Aには、アルカリ金属、アルミニウムの含有量が各々1 ppm以下である高純度Ru原料粉末が記載されているから、請求の範囲1に記載された発明自体に新規性がないとも言える。

そうすると、請求の範囲1-7に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」は存在せず、発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。

次に、この国際出願の請求の範囲に記載されている一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数について検討すると、

- ・ 請求の範囲1と請求の範囲1を引用している請求の範囲3乃至7
- ・ 請求の範囲2と請求の範囲2を引用している請求の範囲3乃至7

に区分される少なくとも2つの発明が記載されていると認める。